

PAT-NO: JP406173054A
DOCUMENT- JP 06173054 A
IDENTIFIER:

TITLE: PURIFICATION METHOD FOR TETRAALKYL AMMONIUM (BI)
CARBONATE AQ. SOLN AND PRODUCTION OF TETRAALKYL
AMMONIUM HYDROXIDE AQUEOUS SOLUTION

PUBN-DATE: June 21, 1994

INVENTOR-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
TAGUCHI, SATOSHI	
SUETSUGU, MASUMI	

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
SUMITOMO CHEM CO LTD	N/A

APPL-NO: JP05049429

APPL-DATE: March 10, 1993

INT-CL (IPC): C25B003/00 , C07C209/84 , C07C211/63

ABSTRACT:

PURPOSE: To obtain the high purity aq. soln. of tetraalkyl ammonium hydroxide from which impurities such as halogens or metals are highly removed.

CONSTITUTION: In the method to obtain the aq. soln. of tetraalkyl ammonium hydroxide from a cathode by feeding the aq. soln of tetraalkyl ammonium (bi)carbonate to an anode room and subjecting to electrolysis using the electrolytic cell separated by at least one cation exchanger film, the aq. soln. of tetraalkyl ammonium (bi)carbonate which is treated in contact with the chelating resin having an amiomethylene phosphonic acid group or the chelating resin having an imino diacetic acid group is subjected to electrolysis,

moreover, the aq. soln. of tetraalkyl ammonium hydroxide is subjected to circuit treatment with a cation exchange resin.

COPYRIGHT: (C)1994,JPO&Japio

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-173054

(43)公開日 平成6年(1994)6月21日

(51)Int.Cl. ⁵	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 2 5 B 3/00		8414-4K		
C 0 7 C 209/84				
211/63		9280-4H		

審査請求 未請求 請求項の数2(全 6 頁)

(21)出願番号	特願平5-49429	(71)出願人	000002093 住友化学工業株式会社 大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号
(22)出願日	平成5年(1993)3月10日	(72)発明者	田口 敏 千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学工業株式会社内
(31)優先権主張番号	特願平4-270085	(72)発明者	末次 益実 千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学工業株式会社内
(32)優先日	平4(1992)10月8日	(74)代理人	弁理士 久保山 隆 (外1名)
(33)優先権主張国	日本(JP)		

(54)【発明の名称】 炭酸(水素)テトラアルキルアンモニウム水溶液の精製方法及び水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液の製造方法

(57)【要約】

【構成】 少なくとも1枚のカチオン交換膜で仕切られた電解槽を用い、その陽極室に炭酸(水素)テトラアルキルアンモニウムの水溶液を供給し、電気分解に付すことにより、陰極室から水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液を得る方法であって、アミノメチレンホスホン酸基を有するキレート樹脂又はイミノジ酢酸基を有するキレート樹脂との接触処理をした炭酸(水素)テトラアルキルアンモニウムの水溶液を電気分解に付し、更に水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液を、陽イオン交換樹脂との接触処理に付す。

【効果】 不純物であるハロゲン類や金属類が高度に除去された高純度の水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液を得ることができる。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 炭酸テトラアルキルアンモニウム及び／又は炭酸水素テトラアルキルアンモニウムの水溶液を、アミノメチレンホスホン酸基を有するキレート樹脂又はイミノジ酢酸基を有するキレート樹脂、及び陽イオン交換樹脂と接触させることを特徴とする炭酸テトラアルキルアンモニウム及び／又は炭酸水素テトラアルキルアンモニウムの水溶液の精製方法。

【請求項2】 少なくとも1枚のカチオン交換膜で仕切られた電解槽を用い、その陽極室に炭酸テトラアルキルアンモニウム及び／又は炭酸水素テトラアルキルアンモニウムの水溶液を供給し、電気分解に付すことにより、陰極室から水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液を得る方法であって、下記(1)及び(2)の条件を満足する水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液の製造方法。

(1) アミノメチレンホスホン酸基を有するキレート樹脂又はイミノジ酢酸基を有するキレート樹脂との接触処理をした炭酸テトラアルキルアンモニウム及び／又は炭酸水素テトラアルキルアンモニウムの水溶液を電気分解に付すこと

(2) 水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液を、陽イオン交換樹脂との接触処理に付すこと

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、炭酸テトラアルキルアンモニウム及び／又は炭酸水素テトラアルキルアンモニウムの水溶液（以下、「炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウム水溶液」と記すことがある。）の精製方法及び水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液の製造方法に関するものである。本発明で得られる炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウム水溶液は、界面活性剤及びその原料、医薬品原料、化粧品原料並びに半導体製造用薬品原料として有用なものである。また、本発明で得られる水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液は、半導体製造工程におけるレジスト現像液として有用なものである。

【0002】

【従来の技術】炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウム水溶液は炭酸ジアルキルとトリアルキルアミンの反応により製造される。ここで、製造された炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウム水溶液中には、使用した原料及び製造用装置材料に由来する不純物が含まれるが、該不純物を高度に除去し、高純度の炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウム水溶液とする方法は知られていない。

【0003】更に、半導体製造時にレジスト現像液として用いられる水酸化テトラアルキルアンモニウムの水溶液は、LSIの集積度が向上し、配線の線巾が細くなるのに伴い、高純度化が強く要求されるようになった。高

純度の水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液を得る方法として、電気分解に供する原料を従来の塩化テトラアルキルアンモニウムから炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウムに変更することにより、不純物であるハロゲン類の低減を図る方法が知られている（特公昭63-15355号公報又は特開昭63-134684号公報参照）。しかしながら、この方法では、不純物である金属類の低減は達成されない。たとえば、上記公報の実施例によると、ナトリウムは2～7ppb、鉄は2～5ppb、カルシウムは1～4ppb程度含有されており、かかる水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液は、高集積度のLSI用としては不満足なものであった。ところで、水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液中のナトリウム、カリウムなどのカチオンを除去する方法として、イオン交換樹脂で処理する方法が知られている。しかしながら、鉄、アルミニウムなどのようにアニオンとして存在するものは、水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液中に多量に存在する水酸化イオンの影響により、その除去が困難であった。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】かかる現状に鑑み、本発明が解決しようとする課題は、不純物であるハロゲン類や金属類が高度に除去された高純度の炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウム水溶液及び水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液を得る方法を提供する点に存する。

【0005】

【課題を解決するための手段】すなわち、本発明のうちの発明は、炭酸テトラアルキルアンモニウム及び／又は炭酸水素テトラアルキルアンモニウムの水溶液を、アミノメチレンホスホン酸基を有するキレート樹脂又はイミノジ酢酸基を有するキレート樹脂、及び陽イオン交換樹脂と接触させることを特徴とする炭酸テトラアルキルアンモニウム及び／又は炭酸水素テトラアルキルアンモニウムの水溶液の精製方法に係るものである。

【0006】また、本発明のうちの他の発明は、少なくとも1枚のカチオン交換膜で仕切られた電解槽を用い、その陽極室に炭酸テトラアルキルアンモニウム及び／又は炭酸水素テトラアルキルアンモニウムの水溶液を供給し、電気分解に付すことにより、陰極室から水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液を得る方法であって、下記(1)及び(2)の条件を満足する水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液の製造方法に係るものである。

(1) アミノメチレンホスホン酸基を有するキレート樹脂又はイミノジ酢酸基を有するキレート樹脂との接触処理をした炭酸テトラアルキルアンモニウム及び／又は炭酸水素テトラアルキルアンモニウムの水溶液を電気分解に付すこと

(2) 水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液を、陽イオン交換樹脂との接触処理に付すこと

【0007】以下、詳細に説明する。炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウムのアルキル基としては、たとえばメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基などをあげることができる。ここで、4個のアルキル基は同じものであってもよく、又は異なっているもよい。なお、半導体製造工程におけるレジスト現像液用途としては、炭酸（水素）テトラメチルアンモニウム及び炭酸（水素）テトラエチルアンモニウムが好ましい。

【0008】粗原料としての炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウム水溶液は、トリアルキルアミンと炭酸ジアルキルをアルコールなどの溶媒中で反応させて得られる炭酸エステルを加水分解することによって得ることができる。またトリアルキルアミンと炭酸ジアルキルを水の存在下に反応させて得ることもできる。炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウム水溶液の濃度としては、たとえばアルキル基を基準とした濃度で、通常1〜70重量%、好ましくは1〜30重量%である。

【0009】上記の粗原料としての炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウム水溶液は、アミノメチレンホスホン酸基を有するキレート樹脂又はイミノジ酢酸基を有するキレート樹脂、及び陽イオン交換樹脂と接触させることにより、不純物を除去し、高純度なものにすることができる。キレート樹脂と陽イオン交換樹脂との接触は、同時に行ってもよく、又は別々に行ってもよいが、各樹脂のコンディショニングや再生を考慮すると、別々に行うのが好ましい。接触方法は、炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウム水溶液を入れた容器中にキレート樹脂又は陽イオン交換樹脂を投入し攪拌するバッチ処理でもよく、又はキレート樹脂又は陽イオン交換樹脂を充填したカラムに炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウム水溶液を通液する連続処理でもよい。工業的には連続処理が好ましい。なお連続処理の場合の通液条件としては、空塔速度（SV）で1〜20 hr⁻¹が適当である。

【0010】上記のキレート樹脂による接触処理を行うことにより、炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウム水溶液中のマグネシウム、マンガン、鉛及び亜鉛の他、鉄、アルミニウム及びニッケルをも高度に除去することができる。また、上記の陽イオン交換樹脂による接触処理を行うことにより、炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウム水溶液中のマグネシウム、マンガン、鉛及び亜鉛の他、カルシウム、カリウム及びナトリウムをも高度に除去することができる。

【0011】次に、高純度の水酸化テトラアルキルアンモニウムの製造方法について述べる。電気分解には少くとも1枚のカチオン交換膜で仕切られた電解槽を用いる。カチオン交換膜としてはスルホン酸基又はカルボン酸基を有するスチレンービニルベンゼン共重合体の膜又は同じ交換基を有するフッ素樹脂の膜などが用いられる。電解槽は陽極と陰極を具備する。陽極としては、白金電極又は白金、酸化パラジウム、酸化イリジウムなど

をチタン上に被覆した電極が用いられる。陰極としては鉄、ニッケル、ステンレススチール、白金などからなる電極、白金被覆電極などを用いることができる。

【0012】かかる電解槽の陽極室には炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウム水溶液を供給し、一方陰極室には水又は水酸化テトラアルキルアンモニウムの水溶液を供給して電気分解を行う。陰極室に水を供給する場合は、電気分解の初期に電気抵抗が高くなるので、陰極室へは水酸化テトラアルキルアンモニウムの水溶液を供給することが好ましい。なお、用いる水酸化テトラアルキルアンモニウムの水溶液は、イオン交換や蒸留などにより不純物を除去した水に水酸化テトラアルキルアンモニウムを溶解して調製する。ここで、水酸化テトラアルキルアンモニウムは、本発明により得られる高純度のものを用いるべきであるが、高純度のものを入手できない場合には、水酸化テトラアルキルアンモニウムの濃度を薄くしたり、電気分解の初期に得られる水酸化テトラアルキルアンモニウムを廃棄するといった処理が必要である。

【0013】陽極室に供給する炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウムの濃度は、通常1〜50重量%であり、一方電気分解の開始時の陰極室の水酸化テトラアルキルアンモニウムの濃度は、通常0.1〜5重量%とする。電気分解の電流密度は、通常0.5〜50 A/dm²、好ましくは5〜30 A/dm²である。電気分解はバッチで行ってもよいが、工業的には連続で行うのが一般的である。連続で行う場合は、陰極室の水酸化テトラアルキルアンモニウムの濃度が2〜25重量%程度になるまで電気分解し、所望の濃度になったところで陰極室の液の一部を製品として抜き出し、陰極室に水を添加しながら電解を続けられればよい。ここで、添加する水は、イオン交換や蒸留などにより不純物を除去したものを用いる。なお、陽極室の液中の炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウムの濃度も電解の進行により低下するので、陽極室の液に炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウムを追加添加して所望の濃度を維持する。

【0014】本発明においては、下記（1）及び（2）の条件を満足することが重要である。

（1）アミノメチレンホスホン酸基を有するキレート樹脂又はイミノジ酢酸基を有するキレート樹脂との接触処理をした炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウム水溶液を電気分解に付すこと

（2）水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液を、陽イオン交換樹脂との接触処理に付すこと

【0015】上記（1）を実現する一つの方法として、電気分解の原料である炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウム水溶液を、アミノメチレンホスホン酸基を有するキレート樹脂又はイミノジ酢酸基を有するキレート樹脂との接触処理をした後に電解槽に供給する方法があげられる。また、他の方法として、電解槽の陽極室中の炭

酸(水素)テトラアルキルアンモニウム水溶液の一部を抜き出し、アミノメチレンホスホン酸基を有するキレート樹脂又はイミノジ酢酸基を有するキレート樹脂との接触処理をした後に陽極室へ再循環する方法があげられる。更に、他の方法として、陽極室の液の循環ラインにアミノメチレンホスホン酸基を有するキレート樹脂又はイミノジ酢酸基を有するキレート樹脂を充填した塔を設け、陽極室の液を該キレート樹脂と接触させながら循環する方法があげられる。

【0016】樹脂に対する通液条件としては、空塔速度 (SV) が1~20 hr⁻¹程度になるように調整する。

(1)の条件を満足させることにより、不純物であるマグネシウム、マンガン、鉛及び亜鉛の他、鉄、アルミニウム及びニッケルをも高度に除去することができる。キレート樹脂との接触処理は、本発明のとおり、電解槽の陽極室の炭酸(水素)テトラアルキルアンモニウム水溶液について実施することが重要である。本発明によることなく、陰極室の水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液をキレート樹脂との接触処理に付しても、鉄、アルミニウムなどは十分に除去されない。

【0017】上記(2)を実現する一つの方法として、電解槽の陰極室から取り出した水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液を、陽イオン交換樹脂との接触処理をした後に製品とする方法があげられる。また、他の方法として、電解槽の陰極室中の水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液の一部を抜き出し、陽イオン交換樹脂との接触処理をした後に陰極室へ再循環する方法があげられる。樹脂に対する通液条件としては、空塔速度 (SV) が1~20 hr⁻¹程度になるように調整する。陽イオン交換樹脂としては、アクリル酸系の弱酸性陽イオン交換樹脂やスチレンージビニルベンゼン系の強酸性陽イオン交換樹脂を用いることができる。(2)の条件を満足させることにより、不純物であるマグネシウム、マンガン、鉛及び亜鉛の他、カルシウム、カリウム及びナトリウムをも高度に除去することができる。陽イオン交換樹脂との接触処理は、本発明のとおり、電解槽の陰極室の水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液について実施することが重要である。本発明によることなく、炭酸(水素)テトラアルキルアンモニウム水溶液を陽イオン交換樹脂との接触処理に付しても、その後電気分解に用

いるイオン交換膜からナトリウム、カルシウムなどが混入することがある。

【0018】

【実施例】次に、実施例により本発明を説明する。

実施例1

トリメチルアミン100gと炭酸ジメチル153gをメタノール200gに溶解し、オートクレーブに仕込んだ。反応温度110℃、反応圧力5kg/cm²で6時間反応させた。反応生成物からメタノール及び未反応のトリメチルアミンなどを減圧留去した後、純水を加え再

度減圧蒸留を行った。その後純水を加え、粗炭酸(水素)テトラメチルアンモニウム水溶液を得た。この水溶液中の炭酸テトラメチルアンモニウム濃度は23重量%であり、炭酸水素テトラメチルアンモニウム濃度は23重量%であった。

【0019】上記の粗炭酸(水素)テトラメチルアンモニウム水溶液をアミノメチレンホスホン酸基を有するキレート樹脂50mlを充填したカラムに、SV=10 hr⁻¹で通液し、更に強酸性陽イオン交換樹脂50mlを充填したカラムに、SV=10 hr⁻¹で通液した。通液前後の液中の金属不純物を表1に示した。表1から、表1に記載した全ての金属が高度に除去されていることがわかる。

【0020】比較例1

実施例1で得られた粗炭酸(水素)テトラメチルアンモニウム水溶液をアミノメチレンホスホン酸基を有するキレート樹脂50mlを充填したカラムに、SV=10 hr⁻¹で通液した。通液後の液中の金属不純物を表1に示した。表1から、カルシウム、カリウム及びナトリウムの除去が不十分であることがわかる。

【0021】比較例2

実施例1で得られた粗炭酸(水素)テトラメチルアンモニウム水溶液を強酸性陽イオン交換樹脂50mlを充填したカラムにSV=10 hr⁻¹で通液した。通液後液中の金属不純物を表1に示した。表1から、アルミニウム、鉄及びニッケルの除去が不十分であることがわかる。

【0022】実施例2

実施例1と同様にして粗炭酸(水素)テトラメチルアンモニウム水溶液を得た。この水溶液を純水で1/5に希釈し、アミノメチレンホスホン酸基を有するキレート樹脂50mlを充填したカラムに、SV=5 hr⁻¹で通液し電気分解の陽極液とした。電解槽として白金陽極、ステンレス陰極を備え、スルホン酸基を有するスチレンージビニルベンゼン共重合体膜で2室に仕切られたものを用いた。陽極室には前記のキレート樹脂処理をした炭酸(水素)テトラメチルアンモニウム水溶液を循環し、陰極室には高純度の水酸化テトラメチルアンモニウムを0.1重量%溶解した純水を循環した。両極間に10A/dm²の電流密度で電流を通じ、4時間電気分解を行った。陰極液の水酸化テトラメチルアンモニウム濃度は電解終了時で5重量%であった。次に得られた水酸化テトラメチルアンモニウム水溶液を、アクリル酸系の弱酸性陽イオン交換樹脂50mlを充填したカラムにSV=5 hr⁻¹で通液した。得られた水酸化テトラメチルアンモニウム水溶液中の不純物を表2に示した。表2から、表に記載した全ての不純物が高度に除去されていることがわかる。

【0023】比較例3

キレート樹脂処理を行わなかったこと以外は実施例2と

同様にして水酸化テトラメチルアンモニウム水溶液を得た。得られた水酸化テトラメチルアンモニウム水溶液中の金属不純物を表2に示した。表2に示すようにアルミニウム、鉄及びニッケルの除去が不十分であり、高集積度LSI製造用レジスト現像液としては不十分なものであることがわかる。

【0024】比較例4

陽イオン交換樹脂処理を行わなかったこと以外は実施例2と同様にして水酸化テトラメチルアンモニウム水溶液を得た。得られた水酸化テトラメチルアンモニウム水溶液中の金属不純物を表2に示した。表2から、カルシウム、カリウム及びナトリウムの除去が不十分であり、高集積度LSI製造用レジスト現像液としては不十分なものであることがわかる。

【0025】実施例3

トリメチルアミンと炭酸ジメチルをモル比1:1でメタノールに溶解したものをオートクレーブに仕込み、反応温度120℃、反応圧力10kg/cm²にて5.5時間反応を行った。次いで減圧蒸留によりメタノールや未反応のトリメチルアミンなどを留去し、純水を加えて、再度減圧蒸留を行った。反応液に純水を加え炭酸(水素)テトラメチルアンモニウム水溶液を得た。この液中の炭酸テトラメチルアンモニウムは25重量%、炭酸水素テトラメチルアンモニウムは22重量%であった。白金被覆チタン陽極とステンレス陰極を備え、スルホン酸基を有するスチレン-ジビニルベンゼン共重合体膜で陽極室と陰極室に仕切られたベンチ用2室電解槽を用意した。陽極液循環ラインにアミノメチレンホスホン酸基を有するキレート樹脂塔を接続し、陽極液として前記炭酸(水素)テトラメチルアンモニウム水溶液を純水で5倍に希釈したのを循環した。なお電解に伴って炭酸(水素)テトラメチルアンモニウム濃度が低下するので、適宜前記の炭酸(水素)テトラメチルアンモニウム水溶液を添加し、濃度の急激な変動がないようにした。陰極液*

*循環ラインには高純度水酸化テトラメチルアンモニウムを0.1重量%純水に溶解したものを循環した。電解開始後陰極液の水酸化テトラメチルアンモニウムが約5重量%になるまで液の循環を継続し、その後、液の一部を循環ラインから抜き出すとともに循環ラインに純水を添加した。電気分解は12A/dm²の電流密度で100時間行った。電気分解初期の電圧は約は12V強であったが、陰極液の水酸化テトラメチルアンモニウム濃度の上昇とともに電圧が低下し、約9Vで安定した。生成した水酸化テトラメチルアンモニウム量から計算した電流効率は約90%であった。陰極液循環ラインから抜き出した水酸化テトラメチルアンモニウム水溶液を、アクリル酸系弱酸性陽イオン交換樹脂塔に通した。得られた水酸化テトラメチルアンモニウム水溶液は実施例1と同様に高純度なものであった。

【0026】実施例4

実施例1と同様にして粗炭酸(水素)テトラメチルアンモニウム水溶液を得た。この水溶液中の炭酸テトラメチルアンモニウム濃度は23重量%であり、炭酸水素テトラメチルアンモニウム濃度は23重量%であった。該粗炭酸(水素)テトラメチルアンモニウム水溶液をイミノジ酢酸基を有するキレート樹脂50mlを充填したカラムに、SV=10hr⁻¹で通液し、更に強酸性陽イオン交換樹脂50mlを充填したカラムに、SV=10hr⁻¹で通液した。通液前後の液中の金属不純物を表3に示した。表3から、表3に記載した全ての金属が高度に除去されていることがわかる。なお、実施例2又は3と同様に、イミノジ酢酸基を有するキレート樹脂で処理した炭酸(水素)テトラメチルアンモニウム水溶液を電解した後、陽イオン交換樹脂との接触処理に付すことにより、高純度の水酸化テトラメチルアンモニウム水溶液が得られる。

【0027】

【表1】

濃度(ppb)	実 施 例1 通液前	通液後	比較例1 通液後	比較例2 通液後
金属				
Al	16	0.1	0.1	15
Ca	5.2	< 0.1	0.6	< 0.1
Fe	35	< 0.1	< 0.1	33
K	7.5	< 0.1	3.6	< 0.1
Mg	2.2	< 0.1	< 0.1	< 0.1
Mn	0.8	< 0.1	< 0.1	< 0.1
Na	12.5	< 0.1	12.1	< 0.1
Ni	8.9	< 0.1	< 0.1	1.2
Pb	2.5	< 0.1	< 0.1	< 0.1
Zn	9.2	< 0.1	< 0.1	< 0.1

【0028】

※50※【表2】

	実施例2	比較例3	比較例4
濃度(ppb)			
金属			
Al	0.1	3	0.1
Ca	< 0.1	< 0.1	1.5
Fe	< 0.1	5	< 0.1
K	< 0.1	< 0.1	1
Mg	< 0.1	< 0.1	< 0.1
Mn	< 0.1	0.3	< 0.1
Na	< 0.1	< 0.1	10
Ni	< 0.1	0.8	< 0.1
Pb	< 0.1	< 0.1	< 0.1
Zn	< 0.1	0.6	< 0.1
塩素	<10	<10	<10

純物であるハロゲン類や金属類が高度に除去された高純度の炭酸（水素）テトラアルキルアンモニウム水溶液及び水酸化テトラアルキルアンモニウム水溶液を得る方法を提供することができた。

10

【0029】

【表3】

	実 施 例 4	
濃度(ppb)	通液前	通液後
金属		
Al	25	0.2
Ca	4.9	< 0.1
Fe	30	< 0.1
K	6.8	< 0.1
Mg	2.5	< 0.1
Mn	0.6	< 0.1
Na	14	< 0.1
Ni	9.2	< 0.1
Pb	2.1	< 0.1
Zn	9.5	< 0.1

20

30

【0030】

【発明の効果】以上説明したとおり、本発明により、不